WEST

End of Result Set

Generate Collection

L1: Entry 17 of 17

File: DWPI

May 31, 1988

DERWENT-ACC-NO: 1988-188467

DERWENT-WEEK: 198827

COPYRIGHT 2003 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Mfg. condensn polymerisable macro-monomer - by polymerising monomer contg. radical polymerisable vinyl! gps. in presence of chain transfer agent having 2 alkyl ester gps.

PATENT-ASSIGNEE:

ASSIGNEE TOA GOSEI CHEM IND LTD CODE

Print

TOAG

PRIORITY-DATA: 1986JP-0272984 (November 18, 1986)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO

PUB-DATE

LANGUAGE

PAGES

MAIN-IPC

JP 63128002 A

May 31, 1988

007

APPLICATION-DATA:

PUB-NO

APPL-DATE

APPL-NO

DESCRIPTOR

JP 63128002A

November 18, 1986

1986JP-0272984

INT-CL (IPC): C08F 2/00; C08G 63/16

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 63128002A

BASIC-ABSTRACT:

Mfg. a condensn. polymerisable macromonomer comprises radical-polymerising a monomer contg. radical polymerisable vinyl gps. in the presence of a chain transfer agent having two alkyl ester gps.

Specifically, the polymerisation is carried out by soln., bulk, suspension and emulsion polymerisation. The vinyl polymerisable monomer used includes vinyl acetate, styrene, vinyl pyridine, etc. The chain transfer agent used includes dialkyl mercaptomalonate, dialkyl thiomalates, dialkyl mercaptophthalates. The number average mol. wt. of the macromonomer is pref. 1000-20,000, esp. 2000-15,000,

ADVANTAGE - The polymerisable macromonomer is simply mfd. in high purity. The mean mol. wt. of the macromonomer is controlled easily. If the macromonomer is condensn. polymerised with a dicarboxylic acid and a diol, a graft polymer with high purity and improved properties e.g. dimensional stability without impurities, e.g., carboxyl and hydroxyl gps., is easily obtd.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TERMS: MANUFACTURE CONDENSATION POLYMERISE MACRO MONOMER POLYMERISE MONOMER CONTAIN RADICAL POLYMERISE POLYVINYL GROUP PRESENCE CHAIN TRANSFER AGENT ALKYL ESTER GROUP

DERWENT-CLASS: A14 A60 E14 E17

CPI-CODES: A02-B; A10-C01; E10-E03; E10-G02A; E10-G02B;

CHEMICAL-CODES:

```
Chemical Indexing M3 *01*
    Fragmentation Code
    G014 G015 G100 H4 H494 H498 H9 J0 J012 J2
    J232 J272 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220
    M221 M222 M223 M224 M231 M232 M233 M272 M282 M311
    M312 M320 M321 M332 M343 M349 M381 M391 M414 M416
    M510 M520 M531 M540 M620 M781 M903 M904 Q121
    Markush Compounds
    198827-E0001-U
    Registry Numbers
    3102R 1678D
```

POLYMER-MULTIPUNCH-CODES-AND-KEY-SERIALS:

Key Serials: 0005 0007 0008 0203 0206 0226 0304 0787 0892 1291 1405 1999 2014 2022 2071 2076 2082 2083 2085 2093 2149 2150 2151 2177 2197 2198 2207 2370 2392 2393 2585 2595 2604 2676

Multipunch Codes: 014 02& 030 031 035 038 05- 055 056 066 067 099 143 144 155 231 239 250 297 31- 344 345 347 348 355 357 359 385 402 413 414 516 523 528 541 542 546 575 583 589 688 724

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C1988-084364

® 日本国特許庁(JP)

の特許出題公開

⑩ 公 開 特 許 公 報 (A) 昭63-128002

<pre>⑤Int.Cl.⁴</pre>	識別記号	庁内整理番号		四公開	昭和63年(1988	3)5月31日
C 08 F 2/00 2/38	MAD MCJ	A-7224-4 J A-2102-4 J	_		m. mm — 144	_	(A = T)
C 08 G 63/16	NMD	7142—4 J	審查請求	未請求	発明の数	1	(全7月)

重縮合性マクロモノマーの製造法 49発明の名称

> 願 昭61-272984 印特

頭 昭61(1986)11月18日 四出

愛知県名古屋市港区船見町1丁目1番地 東亞合成化学工 津 田 隆 砂発 明 者 業株式会社研究所内 愛知県名古屋市港区船見町1丁目1番地 東亞合成化学工 四発 明 者 児 島 史 郎 業株式会社研究所内 愛知県名古屋市港区船見町1丁目1番地 東亞合成化学工 保太郎 伊発 明 者 安田 業株式会社研究所内 愛知県名古屋市港区船見町1丁目1番地 東亞合成化学工 砂発 明 者 藤 博之 加 業株式会社研究所内

東京都港区西新橋1丁目14番1号 東亞合成化学工業株式 の出 願 人

会社

1. 発明の名称

直縮合性マクロモノマーの製造法

2. 特許請求の範囲

1 アルキルエステル基を2個有する連鎖移動 剤の存在下に、ラジカル塩合性のピニル基を含 有する単量体をラジカル重合させることを特徴 とする重縮合性マクロモノマーの製造法。

- 3. 発明の詳細な説明
- (イ) 発明の目的

〔強楽上の利用分野〕

本発明は、片末端に重縮合性の官能基を有す るマクロモノマーの製造法に関するものであり、 **単に詳しくはジカルポン酸の共存下又は不存在** 下にジォール化合物と重縮合し得る重縮合性マ クロモノマーの製造法に関するものである。

該宜額合性マクロモノマーを直紹合してなる グラフトポリマーは、それ自体でも或いは他の ポリエステル系樹脂との樹脂組成物としても、 工英用の成型材料、フィルム、合成繊維、接着 剤或いは塗料等として有用である。

〔従来の技術及びその問題点〕

ポリエチレンテレフタレート(以下、PET と略称する)やポリプチレンテレフタレート。 (以下、PBTと略称する)で代表されるポリ エステルは、合成線維として使用されている他、 最近ではフィルムや成型材料としても広く使用 されている。

皮型材料の内、エンジニアリングブラスチッ クス(以下、エンブラと称す)は著しい成長を 示している分野であるが、PBTやPETは結 晶性エンプラとしての様々な望ましい性質、例 えば使れた耐熱性、耐候性、機械的強度、耐油 性及び耐楽品性等を具備しているため、PBT に関しては既に汎用のエンブラとしての使用実 緩があり、またPBTに関しても今後エンプラ 分野の一角に食い込むものと予想されている。

しかしながら、PBTやPETは成型収慮率 の大きいことに由来する寸法安定性の悪さ、耐 衡撃性、耐アルカリ性、遺装性及び接着性等に

問題が有り、特にPETの場合には結晶化速度の低さから成型性が悪く成型条件のコントロールが難しいという問題が有った。

. .

このために、PETに関しては、PET単独で成型材料として使用することは出来ず、ガラス機雄で強化した強化PETとしてのみ工業的に生産されている。PBTの場合にも、当初非強化グレードの需要が期待されていたにもかかわらずやはり寸法安定性や耐熱性に問題がある為、強化グレードが中心となっている。その結果、温練り成型機の摩耗や成型品強度の方向依存性が新たな問題となっている。

ポリエステルにおける上記のような問題点を 解決するための一つの手段として、他の樹脂と プレンドする方法が盛んに試みられている。例 えば衝撃強度を改良するため各種のエラストマ ーをブレンドしたり、寸法安定性、成型性及び 強要性等を改良する為、非晶性の樹脂をプレン ドする例が、最近の特許公報において数多く提 楽されている。

来端を水設革に変換したものをジオール化合物 及びジカルポン酸と共に重縮合する方法(ジャーナルオブポリマーサイエンスポリマーケミカルエディション(J. Polym. Sci., Polym. Chem. Ed.), 15, P2109(1977)) 等がある。上記ブロック共重合によって得られるブロックポリマーはミクロ多相構造を有するため、単独重合体に無い優れた性質を具備している。

ミクロ多相構造を形成しりるマルテセグメントタイプの共富合体としては、ブロックポリマーの他にグラフトポリマーが考えられ、該グラフトポリマーを得る方法としてPET線維へのステレン(ジャーナルオブポリマーサイエンスポリマーケミカルエディション(J. Polym. Sci., Polym. Chem. Ed.), 11, 2329(1978)、ポリマー(Polymer), 20, 465(1979))やピニルビリジン(京都大学日本化学機能研究所講演集。26, 13 (1969))その他のピニル宣合性モノマーの放射級グラフト宣合

しかしながら、従来提案されているブレンド 法は、単にポリエステルと他の歯脂とを公知の 方法で機械的にプレンドする方法であり、この ような方法では一部の限られた樹脂の組合せ、 例えばポリカーポネート/PBT、ポリカーポ ネート/PET、PBT/エラストマー或いは PBT/PET等のブレンドにおいてしか実用 的に有効な樹脂組成物は得られなかった。

一方、プレンド以外のポリエステルの改質手段として共宜合による方法が知られており、同方法の内でも複数の異種ポリマーセグメントを分子内に導入させるプロック共直合が特に注目されており、その具体例としては、ポリエーテルジオール又はポリエステルジオールをPETやPBTとプロック共重合する方法、アニオン直合で合成したテレケリックなポリステレンのリピングな来端から更にカプロラクトンを開環直合させる方法(ポリマーブレブリント(Polym. Prepr.)。21(1)、P51(1980))並びにカテオン重合で合成したポリステレンの

が提案されている。しかしこれらの方法ではグラフト率が低く特殊な装置を必要とする上、稼業やフィルムの後処理による表面改質に主服がおかれている為、成形用樹脂の製造方法としては現実性が深い。ブタジェンゴム等のラジカルを生成しやすい二直結合をもったポリマーに比べて、PET等のポリエステル骨格は熱的にも化学的にも安定であるため、グラフト化反応は本質的に難しいといえる。

これに対し、片末端に直合性の官能基を有するマクロモノマーをグラフトポリマーの合成に用いる方法があり、酸方法によれば構造が明確に規定されたグラフトポリマーが高いグラフト率で得られることが知られており、本発明者等も、片末端にジカルポキンル基又はジヒドロキンル基を有するステレン系マクロモノマーを用い、酸マクロモノマーとジオール化合物とジカルポン酸とを直縮合することにより、ポリステレンセグメントとポリエステルセグメントからなのクラフトポリマーを得ている。

上記マクロモノマーを用いるグラフトポリマーの製造方法は、前記したような長所を有しているため、ポリエステルの変質手段としては大変興味深いものであるが、片末端にジカルポキシル基又はジヒドロキシル基を有するマクロモノマーを用いてグラフトポリマーを得る方法においては、次に示すような問題があった。

- 1) 酸マクロモノマーを得るために使用することができる逐級移動剤が、モノマーや有機溶剤 に難俗であるために、酸速緩移動剤の使用量が 制限され、目的とする分子量のマクロモノマー が得られ難い。
- 』)上記連級移動剤が水に易溶なため、水媒体中で行われるエマルジョン直合及び懸濁直合においては、該連級移動剤の大部分が媒体中に存在し、宣合の制御に作用するものが過少となる結果、目的とする分子量のマクロモノマーが得られない。
- 間)マクロモノマーの重ね合反応性が低いため、 これをジオール化合物及びジカルボン酸と質額

即ち、本発明は、

. . . .

アルキルエステル基を2個有する連鎖移動剤 の存在下に、ラジカル重合性のビニル基を含有 する単量体をラジカル重合させることを特徴と する進程合性マクロモノマーの製造法である。

以下、本発明について更に詳細に説明する。 [重組合性マクロモノマー]

一般に直縮合性マクロモノマーとは、分子銀の片末端に直縮合しうる官能基を有する比較的低分子量の(数平均分子量で1000~20000)ポリマーを意味するが、本発明においてはこの末端官能基として、アルキルエステル基すなわ

ち一般式R-O-C-(式中Rはアルギル基である)で示される基に限定した重縮合性マクロモノマーを授業するものである。即ち本発明ではマクロモノマーを製造する際に、エステル基を2個有する連鎖移動剤を使用することにより、末端ジェステル型のマクロモノマーを得るのである。

合して得られる塩合体におけるグラフト率があ まり高くない。

IV) グラフトポリマー中に、宋反応の連鎖移動 剤及び宋反応のマクロモノマーがそれぞれ少量 存在することがあるが、これらに含有されるカ ルポキシル基又はヒドロキシル基は、直縮合時 或いは重縮合により得られた度合体の成形加工 時に分子量低下を勝起する原因となる。

従って本発明においては、ミクロ多相構造を 形成して、それ自体又はそれと他のポリエステル系樹脂との組成物が、「産業上の利用分野] の項に述べたような用途に好適に使用されるグラフトポリマーの製造に用いられ、しかも上記 し)~IV)に示した問題点が解決された直離合 性マクロモノマーの製造法を提供することを技 術的課題とする。

(中) 発明の構成

[問題点を解決する為の手段]

本発明者らは、上配の技術的課題を解決する ために鋭意検討した結果、本発明を完成した。

本発明における重組合性マクロモノマーの末端構造の一例としては、

を挙げることができる。ここでRは直鎖又は分 較したアルキル基を意味する。Rとしては炭素 数10以下の直鎖アルキル基が好道に用いられ る。

限の如き不飽和酸無水物並びにNーフェニルマレイミドの如きN一酸換マレイミド等が挙げられる。好ましい単量体としては、スチレン、スナレン誘導体、アクリル酸エステル、メタクリル酸エステル、アクリロニトリル及びメタクリロニトリルが挙げられ、より好ましい単量体としてはスチレンが挙げられる。

本発明における真額合性マクロモノマーの平均分子量は真額合の反応性が摂なわれない範囲であれば良く、好ましくは数平均分子量で1000~20,00であり、より好ましくは2000~15,000である。数平均分子量が1000未満の重縮合性マクロモノマーを重縮合に供いて、該マクロモノくな由来する物性であれないたの分割されない。な合性マクロモノの超にもの反応性が低いためたがである。数では、また20,000を超えるほどの分割をしている。

なお、本発明において上配直縮合性マクロモ

を持つ暭由で、メルカプタン化合物が適当であり、その例としてはメルカプトマロン酸ジアルキル、チオリンゴ酸ジアルキル及びメルカプトフタル酸ジアルキル等が挙げられる。

上記メルカブタン化合物のアルキルエステル 基におけるアルキル基としては、炭素数10以 下のアルキル基が好ましく、その具体例として メナル基、エナル基、プロピル基、プナル基、 ペンテル基、ヘキシル基、ヘブテル基、オクテ ル素、ノニル基及びデシル基が挙げられる。より 分野ましくは、メナル基、エテル基、ブロピル 基及びブナル基であり、 特に好ましくはメテル 基である。アルキル基の炭素数が 10を建える と、マーを重縮合して製造されるグラフトポリ マー中に残存する為好ましくない。

重合は従来公知のラジカル直合開始剤の存在 下或いは非存在下に、上記基鎖移動剤の使用量 も含めて、常法に従って静蔵直合法・ペルク道 合法・けん満直合法・エマルジョン重合法のい ノマーの数平均分子量は、ゲルバーミエーションクロマトグラフィー(以下GPCといり)によるポリスチレン換算分子量であり、湖定条件は次のとおりである。

製置:高速液体クロマトグラフィー(例えば 東洋質達工業料製商品名HLC-802UR)

カラム: ポリステレンのゲル (例えば東洋智 建工薬料製商品名G 4 0 0 0 H 8 及び G 3 0 0 0 H 8)

稻出 辞牒:テトラヒドロフラン

妣出速度: 1 0 × / → カラム温度: 4 0 ℃

校出器:RI検出器

本発明の重縮合性マクロモノマーの製造は、 前記したビニル裏合性単量体をアルギルエステ ル基を2個有する連級移動剤の存在下でラジカ ル連合させる方法によって行なりことができる。

上記ラジカル賞合において使用することができる連級移動剤としては、適当な連級移動剤としては、適当な連級移動定数

ずれかの方法によって行なえば良い。

以下に参考例、実施例及び比較例を挙げ本発明を更に具体的に説明する。なお各例に記載の 多はすべて重量がを意味し、部は重量部を意味 する。

参考例1 テォリンゴ酸ジメテルエステルの合成 所下ロート、進度計、登業吹込管及び撹拌機を. 備えた単業習数に、テォリンゴ酸50部、 ロートルエンスルホン酸5部及びメタノール50 部を入れた後、望業雰囲気で浸拌しながら一次に した。 金融度を80~90でに維持しながら一次に ロートよりメタノール100部を5時間かけて ロートと成した水及び過剰のメタノールをゆって でし、生成した水及び過剰のメタノールをゆって ではよって反応が終了したで で出出させて反応が終了したで 空薬留を行った。 0.7 mmHg で留出温度74~ で変数の分を47部(収率80多)得た。

1 R、元素分析、NMRにより、生成物がテオリンゴ酸ジメテルエステルであることを確認した。 実施例1 末端ジェステル型ステレン系マクロモ

ノマーの製造

攪拌機、還流冷却器、横下ロート及び温度計を 備えつけたガラスフラスコに、スチレン333部 及びチォリンゴ酸ジメチルエステル267部を仕 込み、個下ロートにスチレン667部及びチオリ ンゴ酸ジメチルエステル1246部を入れた。フ **ラスコを加熱昇進して反応液を産流させた。ここ** へ備下ロートから混合液を4時間かけて摘下した。 その後チオリンゴ酸ジメチルエステル267部を 3時間かけて分割仕込みした。分割間隔は15分 とした。分割仕込み終了後更に2時間熟成した。 スチレンの重合転化率は955岁であった。その 後反応系を滅圧し残存モノマーを除去した。この 間の反応温度は、初期の遺流温度146℃から徐 々に上昇し、160℃に達した時点で一定に保っ た。帝融状態の生成物は均一・透明で濁りもなか った。このものをフラスコから取り出し、冷却後 固形状の片末端ジエステル型ステレン系マクロモ ノマー961部を得た。GPCによって求めた平 均分子堂は、Mn = 9,590 Mw = 21,700

反応の連鎖移動剤に起因すると思われる。このものをフラスコから取り出し、冷却後固形状の片束端ジカルボン酸型スチレン系マクロモノマー941部を得た。GPCによって求めた平均分子量は、Mn=12,100 Mw=35,300であった。比較例2 末端ジェドロキシ型スチレン系マクロモノマーの製造

及拌器、遺席冷却器、満下ロート及び温度計をとりつけたガラス製フラスコに、ステレン333 部及びテオグリセリン162部を仕込み、値下ロートにステレン667部を入れた。フラスコを加 無井温して反応被を遺流させた。ここへ満すびリセリンを反応開始より4時間後までに7.56 部に 4時間後から7時間後までに162部反応系に分割仕込みした。分割仕込みの間絡は15分とした。分割仕込みが関係といる。その後反応系を放圧し残存をノマーを除去した。この間の反応 温度に初期の遺流温度146℃から徐々に上昇し、

であった。

比較例 1 宋端シカルポン酸型ステレン系マクロ モノマーの製造

投持基、建ル冷却器、 備下ロート2本及び強度 計を取りつけたガラスフラスコに、ステレン533 部及びチオリンゴ酸 2.2 6 部を仕込み、一方の質 下ロート(演下ロートAとする)にスチレン667 部を入れ、もう一方の滴下ロート(滴下ロートB とする)にチォリンゴ酸1274部、蒸溜水70 部の混合液を入れた。フラスコを加熱昇温して反 心液を遺流させた。ここへ商下ロートAを4時間、 **海下ロートBを8時間かけて尚下した。滴下終了** 後1時間熟成し、その後反応系を減圧して残存モ ノマーと残存水を除去した。熟成終了時点でのス チレンの直合転化率は9428であった。この間 の反応延度は初期の遺流温度135℃から徐々に 上昇し、170℃に達した時点で以後一定に保っ た。また、チオリンゴ酸水溶液の筒下中は、留出 する水を分離・除去しながら反応を進めた。番融 状態の生成物はわずかに白濁しており、これは未

160でに選した時点で一定に保った。裕殿状態 の生成物はわずかに白顔しており、これは未反応 の連級移動剤に起因すると思われる。このものを フラスコから取り出し、冷却後固形状の片末端シ ヒドロキン型ステレン系マクロモノマー958部 を得た。GPCによって求めた平均分子量は、

Mn = 12600 Mw = 51600 Cbook.

実施例1、比較例1及び比較例2において製造した直縮合性マクロモノマーの平均分子量の実側値と地論値を投一1にまとめて示した。ここで該マクロモノマーの分子量の理論値とは、計算式(ステレンのモル数/連鎖移動剤のモル数)×ステレンの分子量によって求められる値である。本発明の直縮合性マクロモノマーでは実測値と理論値がよく一致しており、反応後裕融液の透明性も良好である。従って残存連鎖移動剤がほとんどないと推定される。

	奖施例1		比較例2	
平均 分子 址 . Mn(理論値)	9550	9420	9630	
Min (突測値) Mw (突測値)	I	12100	ì	
Mw/Mn(実砌値)	2.26	292	251	
得られたマクロ モノマーの外観	透射	食有り	供有り	

参考例2 PBTーポリスチレングラフトポリマーの製造 [

投丼機、避流冷却器、温度計及び望業ガス吹き 込み口を備えたセパラブルフラスコに、テレフタ ル酸シメナルエステル882部、1-4プタンシ オール818部、実施例1で製造した末端シエス テル型スチレン系マクロモノマー50部及びテト ラブナルチタネート01部を仕込み、登業気速下

を使用すること以外は、実施例2と全く同様にしてグラフトポリマーを製造した。トルエンによる抽出本は1345であった。

比較参考例 2 PBT-ポリステレングラフトポ リマーの製造 1

重都合性マクロモノマーとして比較例2で製造した末端ツヒドロキン型ステレンマクロモノマーを使用すること以外は、実施例2と全く同様にしてグラフトポリマーを製造した。トルエンによる抽出率は1839であった。

クラフトポリマーのトルエンによる抽出率及び 直紹合反応に仕込んだ直縮合性マクロモノマーの うち、トルエンによって抽出されたマクロモノマー以外は全て、グラフトポリマー化したものと 定して抽出率から計算したグラフト率を、表ー2 にまとめて示した。後ー2からわかるように、 発明によって初られる末端シエステル型の重縮合 性マクロモノマーを用いて製造したグラフトがより マーは、他のマクロモノマーを使用した場合に比 ペてグラフト率が高く、高細度であることがわ で加熱昇越して登យさせ留出するメタノールを除去したがらエステル交換反応させた。この間反応 温度は 150℃から220℃まで上昇した。その 後反応系を除々に滅圧して 1. 4ープタンジオー 以下とした。反応液を270℃に升強し、14プタンジオール留出下で3時間重縮合・高分子にした。反応中系内は0.5mmHg以下に保った。反応中系内は0.5mmHg以下に保った。反応 後盤米を導入して常圧にもとし、生成したグラフトポリマーの高粘度液を取り出した。

冷却・固化後粉砕後、20メッシュのふるいにかけて、ふるいをパスした粉体につきトルエンで20時間ソックスレー抽出した。抽出残盗の重量減少から求めた抽出率は5.8%であった。抽出された成分は朱反応の末端ジエステル型ステレン系マクロモノマーであった。

比較参考例 1 PBTーポリステレングラフトポ リマーの製造 1

直縮合性マクロモノマーとして比較例 1 で製造 した末端ジカルポン散型ステレンマクロモノマー

٥,

表 一 2

		(\$\frac{3}{5}\)_	(5)
	参考例2	比較例!	比較例2
トルエンによる 抽出率(5)	5. 8	1 3.4	1 8.3
グラフト率 (*)	8 2 6	5 % 8	4 5. 1

(1) 発明の効果

実施例1及び比較例1、比較例2の結果からも明らかなように、本発明によれば高純度の直離合性マクロモノマーを容易に製造でき、数マクロモノマーの平均分子量のコントロールも容易である。このマクロモノマーをシカルポンを最及びジオールと直縮合すれば、グラフトポリマーは実施の2と比較参考例1又は比較参考例2との対比のらわかるように純度が高い。これは1)本発

明において使用した連鎖移動剤がモノマーや有 根容剤に簡単に溶解し、宣合反応中に析出して こないこと、及び II) 本発明によって得られた 血糖合性マクロモノマーの末端ジエステル基が 容易にエステル交換反応すること、によると考 えられる。

また本発明によって得られた重縮合性マクロモノマーを取縮合して製造されたグラフトポリマーは、カルボキシル基やヒドロキシル基等の、成形加工時に分子並低下を招いて成形品の物性を低下させる不純物を含まないため、実用的にも好ましい。

特許出願人

東亞合成化学工業株式会社